

PCT/JP03/07481

10/18/5 036

PCT/PTO

07 DEC

12.06.03

2004

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

REC'D 01 AUG 2003

WIPO

PCT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2002年 6月13日

出 願 番 号  
Application Number: 特願2002-173198  
[ST. 10/C]: [JP2002-173198]

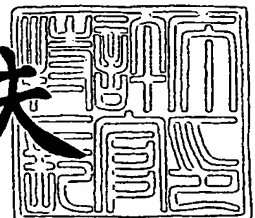
出 願 人  
Applicant(s): 財団法人生産技術研究奨励会  
コンパニア ブラジレイラ デ メタルジア イ ミネラサ  
ウン

PRIORITY DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2003年 7月11日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



BEST AVAILABLE COPY

出証番号 出証特2003-305666(

【書類名】 特許願

【整理番号】 IIS0204001

【提出日】 平成14年 6月13日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C22B 34/24

【発明の名称】 ニオブ粉末の製造方法、金属粉末の製造方法、及び金属原料成形体

【請求項の数】 16

【発明者】

    【住所又は居所】 東京都武蔵野市吉祥寺南町3丁目38番3号

    【氏名】 岡部 徹

【発明者】

    【住所又は居所】 千葉県木更津市東太田4丁目7番24号

    【氏名】 今葦倍 正名

【特許出願人】

    【識別番号】 801000049

    【氏名又は名称】 財団法人生産技術研究奨励会

【特許出願人】

    【住所又は居所】 ブラジル サンパウロ州 セーイーペー 04552-902 サンパウロ リュア ペケチッタ, 111

    【氏名又は名称】 コンパニア ブラジレイラ デ メタルジア イ ミネラサウン

【代理人】

    【識別番号】 100064908

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 志賀 正武

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100108578

【弁理士】

【氏名又は名称】 高橋 詔男

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100089037

【弁理士】

【氏名又は名称】 渡邊 隆

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100101465

【弁理士】

【氏名又は名称】 青山 正和

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100094400

【弁理士】

【氏名又は名称】 鈴木 三義

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100107836

【弁理士】

【氏名又は名称】 西 和哉

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100108453

【弁理士】

【氏名又は名称】 村山 靖彦

## 【手数料の表示】

【予納台帳番号】 008707

【納付金額】 21,000円

## 【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0203645

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 ニオブ粉末の製造方法、金属粉末の製造方法、及び金属原料成形体

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 ニオブ化合物を原料とし、該ニオブ化合物を還元してニオブを製造する方法であって、

前記ニオブ化合物を粘結剤と混合し、所定形状に成形した後、焼成してニオブ原料成形体を作製する成形工程と、

前記ニオブ原料成形体と活性金属とを接触させることにより前記ニオブ化合物を還元してニオブを生成する還元工程と、

を含むことを特徴とするニオブ粉末の製造方法。

【請求項 2】 前記ニオブ原料成形体を作製する工程において、ニオブ化合物と、粘結剤と、還元助剤としての活性金属化合物とを混合し、所定形状に成形した後、焼成することを特徴とする請求項 1 に記載のニオブ粉末の製造方法。

【請求項 3】 前記活性金属として、カルシウム、マグネシウム、ナトリウム、バリウム、カリウムから選ばれる 1 種以上の金属を用いることを特徴とする請求項 1 又は 2 に記載のニオブ粉末の製造方法。

【請求項 4】 前記還元助剤として、カルシウム、マグネシウム、ナトリウム、バリウム、カリウムから選ばれる 1 種以上の金属の化合物を用いることを特徴とする請求項 2 又は 3 に記載のニオブ粉末の製造方法。

【請求項 5】 前記ニオブ化合物として、酸化ニオブ又はハロゲン化ニオブを用いることを特徴とする請求項 1 ないし 4 のいずれか 1 項に記載のニオブ粉末の製造方法。

【請求項 6】 前記還元工程における成形体の温度を、600℃以上1300℃以下とすることを特徴とする請求項 1 ないし 5 のいずれか 1 項に記載のニオブ粉末の製造方法。

【請求項 7】 前記成形工程において作製される成形体の形状を、成形体内部の任意の位置から成形体表面までの距離が10mm以下である形状に成形することを特徴とする請求項 1 ないし 6 のいずれか 1 項に記載のニオブ粉末の製造方

法。

【請求項 8】 前記還元工程で生成したニオブと、還元剤及び副生成物とを、酸処理により分離する工程を含むことを特徴とする請求項 1 ないし 7 のいずれか 1 項に記載のニオブ粉末の製造方法。

【請求項 9】 金属化合物を原料とし、前記金属化合物を還元して金属を製造する方法であって、

前記金属化合物を粘結剤と混合し、所定形状に成形した後、焼成して金属原料成形体を作製する成形工程と、

前記金属原料成形体を活性金属により還元する還元工程と、  
を含むことを特徴とする金属粉末の製造方法。

【請求項 10】 前記原料として、ジルコニウム、チタン、ハフニウム、タンタル、希土類金属、アクチノイド金属のいずれかの金属元素の化合物を用いることを特徴とする請求項 9 に記載の金属粉末の製造法。

【請求項 11】 前記活性金属として、カルシウム、マグネシウム、ナトリウム、バリウム、カリウムから選ばれる 1 種以上の金属を用いることを特徴とする請求項 9 又は 10 に記載の金属粉末の製造方法。

【請求項 12】 前記還元工程で生成した金属と、還元剤及び副生成物とを、酸処理により分離する工程を含むことを特徴とする請求項 9 ないし 11 のいずれか 1 項に記載の金属粉末の製造方法。

【請求項 13】 金属化合物と粘結剤とを混合し、所定形状に成形後焼成してなる金属化合物の成形体であって、

前記成形体内部の任意の位置から成形体表面までの距離が、10 mm 以下とされたことを特徴とする金属原料成形体。

【請求項 14】 前記金属化合物が、ニオブ、ジルコニウム、チタン、ハフニウム、タンタル、希土類金属、アクチノイド金属のいずれかの金属元素の化合物原料を含むことを特徴とする請求項 13 に記載の金属原料成形体。

【請求項 15】 前記金属化合物の成形体が、カルシウム、マグネシウム、ナトリウム、バリウム、カリウムから選ばれる 1 種以上の金属の化合物を還元助剤として含むことを特徴とする請求項 13 又は 14 に記載の金属原料成形体。

【請求項 16】 前記金属化合物の成形体が、カルシウム、マグネシウム、ナトリウム、バリウム、カリウムから選ばれる 1 種以上の金属の酸化物、ハロゲン化物、炭酸塩を還元助剤として含むことを特徴とする請求項 15 に記載の金属原料成形体。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、ニオブ粉末の製造方法、金属粉末の製造方法、及びこれらの製造方法に適用することができる金属原料成形体に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

ニオブやタンタルなどの高融点レアメタルは、融点が高いだけでなく、高温では化学的に活性であるため、塊状の金属を粉末状にするのは高度な技術が必要である。このようなレアメタルの製造方法として、金属を溶解して得た金属の液体を噴霧することにより粉末化するアトマイズ法は有効な粉末製造法の一つであるが、レアメタルのような高融点金属を溶解するために高価な装置が必要である。

また、レアメタルと水素を反応させ、いったん水素化物にして、これを機械的に粉砕する HDH 法（水素化・粉砕・脱水素法）があるが、この方法は微細で均一な粒度の粉末の製造が困難である。

【0003】

現在、タンタルなどの高融点金属は、コンデンサ用の素材として粉末状のものが工業的に製造されているが、この粉末は、主として活性な金属を還元剤として利用して原料を還元する金属熱還元法により製造されている。金属熱還元法を利用すると、還元反応により直接粉末状のタンタルを直接製造できる利点がある。しかし、還元反応で均一な粉末を多量に効率良く製造することは難しく、特に反応量を増大させると得られる粉末の均一性が低下するという欠点がある。

【0004】

現状では多量のハライド系の溶融塩を反応媒体（希釈塩）として利用し、この反応媒体に原料および還元剤を少量ずつ添加することにより均一な還元反応を進

行させることにより粉末状のタンタルを製造している。この方法は、高純度で均一な粉末を製造するのに適しているが、多量の反応媒体塩を必要とすること、プロセスの大型化・高速化が困難であるといった難点を抱えている。

#### 【0005】

ニオブについても上記方法により多量の反応媒体塩を利用する方法で還元すれば均一な粉末が得られるが、タンタルの製法と同様に、反応媒体塩を用いずに還元する場合は、均一な粉末を得ることが困難である。

#### 【0006】

##### 【発明が解決しようとする課題】

本発明は、上記従来技術の問題点に鑑みて成されたものであって、ニオブ化合物から直接高純度のニオブ粉末を効率よく製造することができ、好ましくはプロセスの連続化も容易なニオブ粉末の製造方法を提供することを目的としている。

また本発明は、金属化合物から高純度の金属粉末を効率よく製造することができ、好ましくは連続的に得ることができる金属粉末の製造方法を提供することを目的としている。

また本発明は、上述の製造方法に用いて好適な金属原料成形体を提供することを目的としている。

#### 【0007】

##### 【課題を解決するための手段】

本発明に係るニオブ粉末の製造方法は、ニオブ化合物を原料とし、該ニオブ化合物を還元してニオブを製造する方法であって、前記ニオブ化合物を粘結剤と混合し、所定形状に成形した後、焼成してニオブ原料成形体を作製する成形工程と、前記ニオブ原料成形体と活性金属とを接触させることにより前記ニオブ化合物を還元してニオブを生成する還元工程と、を含むことを特徴とする。

#### 【0008】

上述したレアメタルの製造において、均一な粉末が得られない最大の理由は、還元量を増大させると原料中への還元剤の拡散が不均一となり、原料の部位によって時間的・空間的に還元反応の進行具合に不均一が生じるためであると考えられる。そこで、本発明者らは、還元反応を均一に進行させるために、ニオブ原



料と粘結剤（バインダ）を混合してスラリーを作製し、これを、板状、線状、粒状などの所定形状の成形体に加工し、この成形体を還元反応に供することで、ニオブ原料中に還元剤が拡散しやすいように通気性を確保することとした。このように還元装置内にニオブ原料の成形体を設置して還元反応を進行させることで還元プロセスの連続化、大型化、バッチ処理の効率化を簡便な装置で行うことができる。すなわち、従来の金属熱還元反応では、プロセスの連続化や高速化が困難であったが、本発明に係る製造方法で用いられるニオブ原料の成形体は、その製造、熱処理、還元、洗浄などの流れ作業が容易に達成できる特徴があるため、容易にプロセスを連続化、大型化することができる。

特に、従来の方法では、原料の量を増大させると得られる粉末が不均一となることが多く、生産性が低かったが、本発明に係る製造方法により、還元プロセスの大型化、高速化を容易に達成することができる。

#### 【0009】

次に、本発明に係るニオブ粉末の製造方法においては、前記ニオブ原料成形体を作製する工程において、ニオブ化合物と、粘結剤と、還元助剤としての活性金属化合物とを混合し、所定形状に成形した後、焼成する構成とすることができる。

このような構成とすることで、還元工程における反応を促進し、製造効率を高めることができるとともに、前記成形体の製造時に成形体中に助剤を混入させるため、助剤を成形体中に分散させ、均一に作用させることができる。さらに、本発明に係る製造方法によれば、上記還元助剤の種類及び還元助剤の添加比により生成されるニオブ粉末の粒径を制御することも可能である。

#### 【0010】

次に、本発明に係るニオブ粉末の製造方法においては、前記活性金属として、カルシウム、マグネシウム、ナトリウム、バリウム、カリウムから選ばれる1種以上の金属を用いることが好ましい。係る金属を用いてニオブ原料の還元を行うことで、効率よく還元反応を進行させることができる。

#### 【0011】

次に、本発明に係るニオブ粉末の製造方法においては、前記還元助剤として、

カルシウム、マグネシウム、ナトリウム、バリウム、カリウムから選ばれる 1 種以上の金属の化合物を用いることが好ましい。係る金属化合物を還元助剤として含む成形体を用いることで、還元工程の反応効率及び均一性を高めることができる。

#### 【0012】

次に、本発明に係るニオブ粉末の製造方法においては、前記還元工程における成形体の温度を、600℃以上1300℃以下とすることが好ましい。成形体温度が600℃以下では、還元剤の蒸気圧が低く反応が十分に進行せず、成形体温度が1300℃を越えると、生成するニオブ粉末の焼結が進行するためである。

#### 【0013】

次に、本発明に係るニオブ粉末の製造方法においては、前記成形工程において作製される成形体の形状を、成形体内部の任意の位置から成形体表面までの距離が10mm以下である形状に成形することが好ましい。上記の「成形体内部の任意の位置から成形体表面までの距離」とは、成形体の内部の任意の位置から最短距離にある表面までの距離を示している。すなわち、当該製造方法における還元工程において成形体表面から内部へ還元剤が拡散され、成形体に含まれる金属化合物が還元されることとなる。従って、成形体の形状を上記の形状とするならば、還元反応終了時点において成形体表面からの還元剤の最大の拡散距離は10mm以下となり、成形体表面から成形体内部に拡散される還元剤の拡散処理が部位により著しく異なることがなく、成形体全体においてニオブ原料を均一かつ高速に還元することができる。

#### 【0014】

次に、本発明に係るニオブ粉末の製造方法においては、前記還元工程で生成したニオブと、還元剤及び副生成物とを、酸処理により分離する工程を含むことができる。本発明に係る製造方法では、目的物であるニオブと、還元剤及び還元反応に伴い生じる副生成物とを、酸処理することにより容易に分離することができ、高純度のニオブを大量に製造するのに適した製造方法とされている。また、本発明に係る製造方法では、ニオブ原料成形体を反応に供するため、還元後にも前記成形体の形状がほぼ保持されるため、この還元後の成形体に対して酸処理を行

うことで、効率よく還元剤及び副生成物を除去することができるという利点もある。

#### 【0015】

次に、本発明に係る金属粉末の製造方法は、金属化合物を原料とし、前記金属化合物を還元して金属を製造する方法であって、前記金属化合物を粘結剤と混合し、所定形状に成形した後、焼成して金属原料成形体を作製する成形工程と、前記金属原料成形体を活性金属により還元する還元工程と、を含むことを特徴とする。

また本発明に係る金属粉末の製造方法においては、前記原料として、ジルコニウム、チタン、ハフニウム、タンタル、希土類金属、アクチノイド金属のいずれかの金属元素の化合物を用いることができる。

#### 【0016】

本発明に係る製造方法は、上記ニオブ粉末の製造に限定されず、上記に挙げた金属粉末の製造に容易に適用することができる。本発明の製造方法を適用することで、現状ではバッチプロセスにより製造されている上記金属粉末の製造を容易に連続化することができる。

#### 【0017】

次に、本発明に係る金属粉末の製造方法においては、前記活性金属として、カルシウム、マグネシウム、ナトリウム、バリウム、カリウムから選ばれる1種以上の金属を用いることが好ましい。係る金属を用いて金属原料の還元を行うことで、ニオブを製造する場合と同様に効率よく還元反応を進行させることができる。

#### 【0018】

また本発明に係る金属粉末の製造方法においても、前記還元工程で生成した金属と、還元剤及び副生成物とを、酸処理により分離する工程を含むことができ、生成した金属と、還元剤及び副生成物とを容易に分離することができ、高純度の金属を得ることができる。

#### 【0019】

次に、本発明に係る金属原料成形体は、金属化合物と粘結剤とを混合し、所定

形状に成形後焼成してなる金属化合物の成形体であって、前記成形体内部の任意の位置から成形体表面までの距離が、10mm以下とされたことを特徴としている。

上記形状を備えた金属材料成形体によれば、本発明に係る製造方法に用いて好適な金属原料の成形体を提供することができる。上記の「成形体内部の任意の位置から成形体表面までの距離」とは、成形体の内部の任意の位置から最短距離にある表面までの距離を示している。すなわち、当該成形体を還元反応に供した場合には成形体表面から内部へ還元剤が拡散され、成形体に含まれる金属化合物が還元されることとなるが、上記形状を備えた成形体であれば、成形体表面からの還元剤の拡散距離が10mm以下となるようにすることができる。従って、還元剤の拡散が不十分になるのを効果的に防止し、均一かつ高速に金属材料を還元することができる金属材料成形体を提供することができる。

#### 【0020】

次に、本発明に係る金属原料成形体は、前記金属化合物が、ニオブ、ジルコニウム、チタン、ハフニウム、タンタル、希土類金属、アクチノイド金属のいずれかの金属元素の化合物である構成とすることができる。すなわち、本発明に係る金属原料成形体は、金属熱還元反応による上記金属の製造に好適に用いることができる。

#### 【0021】

次に、本発明に係る金属原料成形体においては、前記金属化合物の成形体が、カルシウム、マグネシウム、ナトリウム、バリウム、カリウムから選ばれる1種以上の金属の化合物を還元助剤として含む構成とすることができる。このような構成とすることで、成形体中に助剤が均一に拡散された金属原料成形体を得ることができるので、効率よく還元反応を進行させることができる成形体を提供することができる。

#### 【0022】

次に、本発明に係る金属原料成形体においては、前記金属化合物の成形体が、カルシウム、マグネシウム、ナトリウム、バリウム、カリウムから選ばれる1種以上の金属の酸化物、ハロゲン化物、炭酸塩を還元助剤として含む構成とするこ

とが好ましい。活性金属の化合物のうちでも、上記に挙げた化合物を用いることで、さらに有効に作用する還元助剤を含む成形体とすることができる。

### 【0023】

#### 【発明の実施の形態】

以下、本発明の実施の形態を図面を参照して詳細に説明する。図1は、本発明に係る金属の製造装置の一例を示す断面図である。

図1に示す製造装置は、ステンレス鋼などの耐熱材からなる密閉容器である反応容器10と、反応容器10内に配設された複数の平板状の金属原料成形体12と、これらの成形体12を縦位置に支持するために成形体12の上下に設けられた支持部材13、14とを備えて構成されている。そして、反応容器10の底部には、成形体12の金属原料を還元するための還元剤である活性金属15が導入されている。尚、図示した反応容器10は加熱手段を備えないものであるが、反応容器10内を所定温度に加熱し、活性金属15を気化させるための加熱手段が設けられていてもよい。

そして、前記加熱手段により活性金属15を加熱気化させて反応容器10中に活性金属15の気体を拡散させ、成形体12の表面から内部へ還元剤である活性金属15を拡散させることにより成形体12に含まれる金属化合物を還元して金属を生成するようになっている。

### 【0024】

上述の製造装置を用いた金属熱還元法によりニオブを製造するには、まず、原料であるニオブ化合物を含むニオブ原料成形体を作製する。この成形体は、ニオブ原料と粘結剤（バインダ）と還元助剤とを混合して所定形状に成形することで得られる。好ましくは、成形後に300～1000℃程度の温度で焼成して粘結剤を除去しておく。焼成を行う場合には、大気中又は酸素雰囲気中で行うのがよい。

### 【0025】

ニオブ原料としては、例えば、 $\text{Nb}_2\text{O}_5$ 、 $\text{NbO}_x$ （ニオブの低級酸化物）、 $\text{NbCl}_5$ 、 $\text{K}_2\text{NbF}_7$ 等のニオブ化合物を用いることができる。

粘結剤としては、ニオブ原料及び還元助剤と混合することで成形することがで

き、また還元反応に無関係で、熱処理により容易に除去することができるものであれば問題なく適用することができ、例えば、コロジオンやセルロースなどの有機化合物を用いることができる。

還元助剤は、必要に応じてニオブ原料及び粘結剤に添加されてこれらとともに成形体を構成し、成形体中にこの還元助剤を分散しておくことで、還元工程における反応効率を高め、ニオブ原料の還元をより均一に行うことが可能となる。この還元助剤としては、カルシウム、マグネシウム、ナトリウム、バリウム、カリウムから選ばれる1種以上の金属の化合物を用いることが好ましく、これらの金属の酸化物、ハロゲン化物、炭酸塩、水酸化物、塩化物、フッ化物を用いることがより好ましい。

#### 【0026】

また、上記成形工程において作製される成形体の形状としては、成形体内部の任意の位置から成形体表面までの最短の距離が、10 mm以下である形状とすることが好ましい。このような形状とすることで、後述する還元工程において成形体表面から内部に向かって拡散する還元剤の拡散距離を10 mm以下とすることができるので、還元反応を高速かつ均一に進行させることができる。より具体的には、例えば板状、線状、粒状等の形状が挙げられ、板状とする場合に上記の条件に合致するためには板厚を20 mm以下とすれば良く、線状であれば長さ方向の中心線に直交する断面における外周と中心との距離が10 mm以下となるようにすればよい。また、粒状とする場合には、その直径が20 mm以下となるようにすればよい。

#### 【0027】

次に、上記工程により得られた成形体を、図1に示すように反応容器10内に成形体12として導入する。図1では成形体12を板状又は線状とし、これらを縦位置に支持した場合について図示しているが、容器内における成形体12の配置状態は、図示の配置に限定されず、成形体の形状に応じて適宜変更することができる。

また、反応容器10内の底部に、還元剤である活性金属15を導入しておく。この活性金属15としては、カルシウム、マグネシウム、ナトリウム、バリウム

、カリウムから選ばれる 1 種又は 2 種以上の金属を用いることが好ましい。図示した製造装置では、活性金属 15 を容器底部に配置しているが、活性金属 15 は例えば支持部材 14 上に配置しても良く、縦位置に支持された成形体 12、12 間に配置しても良い。

次いで、反応容器 10 を密閉して還元工程の準備を終了する。

#### 【0028】

そして、成形体 12 及び活性金属 15 が導入された反応容器 10 を、加熱炉内に配置し、反応容器 10 を加熱する。すると、加熱により活性金属 15 が気化されて容器 10 内に充満されるとともに、成形体 12 表面から還元反応が進行し、成形体 12 に含まれるニオブ原料が還元され、金属ニオブが生成される。

この還元工程における加熱温度としては、成形体 12 の温度が 600℃～1300℃となる温度とすることが好ましい。反応時間は、成形体 12 の寸法や加熱温度等にもよるが、成形体 12 を厚さ数mmの板状とし、800℃以上の温度で 1 時間以上保持すれば十分に還元反応は終了する。

#### 【0029】

次に、反応容器 10 の冷却後、還元反応が終了した成形体を容器 10 から取り出す。この反応後の成形体は、反応前の成形体 12 の形状をほぼ保持しているが、生成したニオブと、還元により生じた活性金属の化合物（副生成物）、余剰の還元剤、及び還元助剤から概略構成されている。次いで、取り出された成形体を酸処理することで、生成したニオブと、活性金属の化合物、還元剤、還元助剤とを分離することで、ニオブ粉末を得ることができる。この酸処理としては、例えば、酸洗浄を行った後、有機溶媒による酸の置換処理を行う。上記酸洗浄には、塩酸、酢酸、硝酸、フッ酸、硫酸など種々の酸を用いることができる。

本発明に係る製造方法においては、還元反応が終了した後に、投入した成形体 12 とほぼ同様の形状を有し、生成したニオブを含む成形体が得られるため、その後の分離工程における酸処理についても酸の浸透性が良好であり、ニオブ粉末の分離を高速かつ均一に行うことが可能である。

#### 【0030】

このように、本発明に係る原料成形体は、その製造、熱処理、還元、洗浄など

の流れ作業が容易に達成できる特徴を有しており、多量に処理する場合においても成形体の大きさや数量を増加することで容易に対応することができ、また成形体の処理数量を増やしたとしても反応速度や反応の均一性が損なわれることがない。従って、本発明に係る製造方法並びに原料成形体によれば、容易にプロセスを連続化、大型化することができる。

また、本発明に係るニオブ粉末の製造方法によれば、ニオブ原料を含む成形体を介した還元反応を行うことで、高速かつ均一に原料の還元を行うことができるため、得られるニオブ粉末が高純度で均一な粒度を有する点においても有効である。

#### 【0031】

上記実施の形態では、ニオブ粉末の製造方法について詳細に説明したが、本発明に係る製造方法は、他の金属粉末の製造にも容易に適用することができる。すなわち、成形工程において粘結剤及び還元助剤と混合される原料として、目的とする金属の化合物を用いることで、金属の粉末を多量に効率よく製造することができる。本発明に係る製造方法により好適に製造することができる金属としては、ジルコニウム、チタン、ハフニウム、タンタル、希土類金属、アクチノイド金属等を挙げることができる。

#### 【0032】

##### 【実施例】

次に、実施例により本発明を更に詳細に説明するが、以下の実施例は本発明を限定するものではない。

本例では、図1に示す製造装置を用いて、金属熱還元反応によるニオブの製造を行った。

ニオブ原料 ( $\text{Nb}_2\text{O}_5$ 、100g) に対し、還元助剤 ( $\text{CaCl}_2$ 、 $\text{CaCO}_3$ 、 $\text{Na}_2\text{CO}_3$ 、 $\text{NaCl}$  のうち1種又は2種以上を選択して添加した。) は、0～80重量%添加した。具体的には、還元助剤添加重量は、Nb 1モルに対し、助剤のカチオン ( $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Na}^{+}$ ) が0、1/10、1/5、1/2モルとなるようにした。

次いで、上記ニオブ原料、還元助剤と、粘結剤を混合してスラリーを作製した



。粘結剤は、上記原料と助剤と同体積の 5 %コロジオン溶液（5 %ニトロセルロース、40 %エーテル、55 %エタノール）とした。

そして、得られたスラリーに粘性を調節するためのアセトンを適量加えた後、数mm厚、20cm角の鋳型に鋳込み、複数の成形体を製造した。成形体の厚さは、3mm程度のものと6mm程度のものを2種類用意した。

次に、得られた成形体を1000℃の大気雰囲気での炉で1時間焼成し、ニオブ原料と助剤の混合物から、粘結剤及び溶剤・水分を完全に除去した。このような焼成を行うことで、還元剤を節約し、かつ生成したニオブ粉末中への炭素汚染を防ぐことができる。

#### 【0033】

こうして得られた成形体を複数個、通気性が確保されるように工夫し、マグネシウム還元剤（活性金属15）とともに反応容器10に入れ、反応容器10を密閉した。次に、この成形体12と還元剤15が導入された反応容器10を、1000℃に保持した電気炉に6時間投入し、還元反応を十分に進行させた後、容器ごと炉外に取出し、冷却した。

#### 【0034】

還元後得られた成形体（金属ニオブ粉末と助剤とMgO、Mgの混合物）は、酢酸水溶液（1+1）にて粗洗浄したのち、1NHCl水溶液にて2回洗浄し、さらに、アルコール、アセトン、で置換後、乾燥させた。

#### 【0035】

得られたニオブの評価：図2は、50x20x3mm角の原料成形体を1000℃で6時間マグネシウム蒸気と反応させニオブ原料を還元し、冷却後、酢酸水溶液（1+1）にて粗洗浄したのち、1NHCl水溶液にて2回洗浄し、さらに、アルコール、アセトン、で置換後、乾燥させて得たニオブ粉末の走査型電子顕微鏡による形態の写真である。尚、図2に示す写真は、助剤の種類（横軸）とカチオン比（縦軸）とによりマトリクス状に配置されている。

この図に示すように、原料成形体中の助剤の種類と量を変化させることにより、ニオブ粉末の粒度が制御できることがわかった。写真一コマの横幅は約15μmであり、助剤の種類や量によって粒度は異なるが、0.5～3μm程度の一次粒

径を有するニオブ粉末が得られた。

### 【0036】

#### 【発明の効果】

以上詳細に説明したように、本発明に係るニオブ粉末の製造方法は、ニオブ化合物を粘結剤と混合し、所定形状に成形した後、焼成してニオブ原料成形体を作製する成形工程と、前記ニオブ原料成形体と活性金属とを接触させることにより前記ニオブ化合物を還元してニオブを生成する還元工程と、を含む製造方法とされたことで、還元反応を均一に進行させることができるとともに、還元装置内にニオブ原料の成形体を設置して還元反応を進行させることで還元プロセスの連続化、大型化、バッチ処理の効率化を簡便な装置で行うことができる。

### 【0037】

また、本発明に係る製造方法によれば、ニオブ以外のジルコニウム、チタン、ハフニウム、タンタル、希土類金属、アクチノイド金属等の金属粉末を効率よく製造することができる。

### 【0038】

次に、本発明に係る金属材料成形体は、金属化合物と粘結剤とを混合し、所定形状に成形後焼成してなる金属化合物の成形体であって、前記成形体内部の任意の位置から成形体表面までの距離が、10mm以下とされた構成を備えたことで、成形体表面からの還元剤の拡散距離が10mm以下となるようにすることができ、均一かつ高速に金属化合物の還元を行うことができるものである。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】 図1は、本発明に係る金属の製造装置を示す断面構成図である。

【図2】 図2は、本発明の実施例において作製されたニオブ粉末の電子顕微鏡写真である。

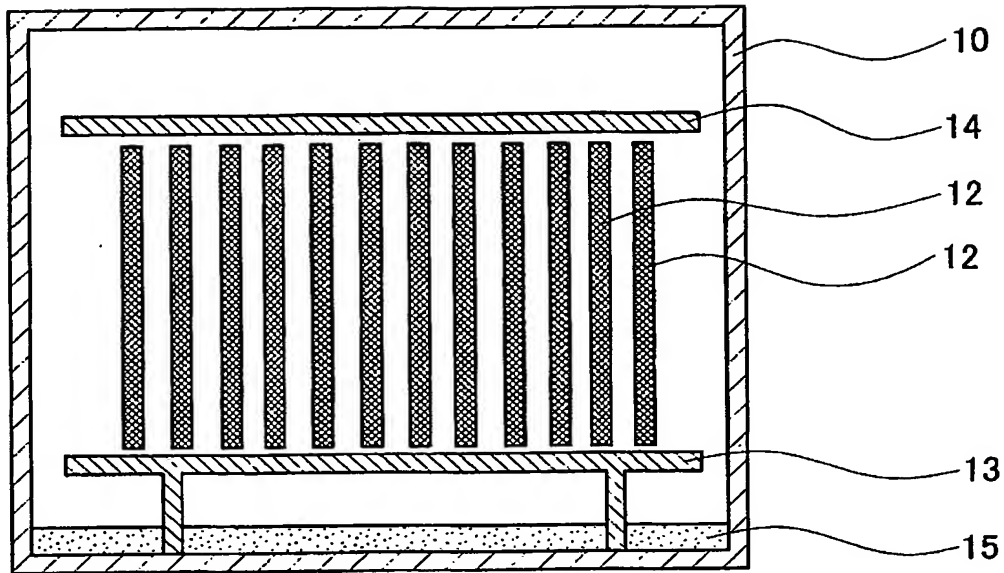
#### 【符号の説明】

- 10 反応容器
- 12 金属原料成形体
- 13、14 支持部材
- 15 活性金属

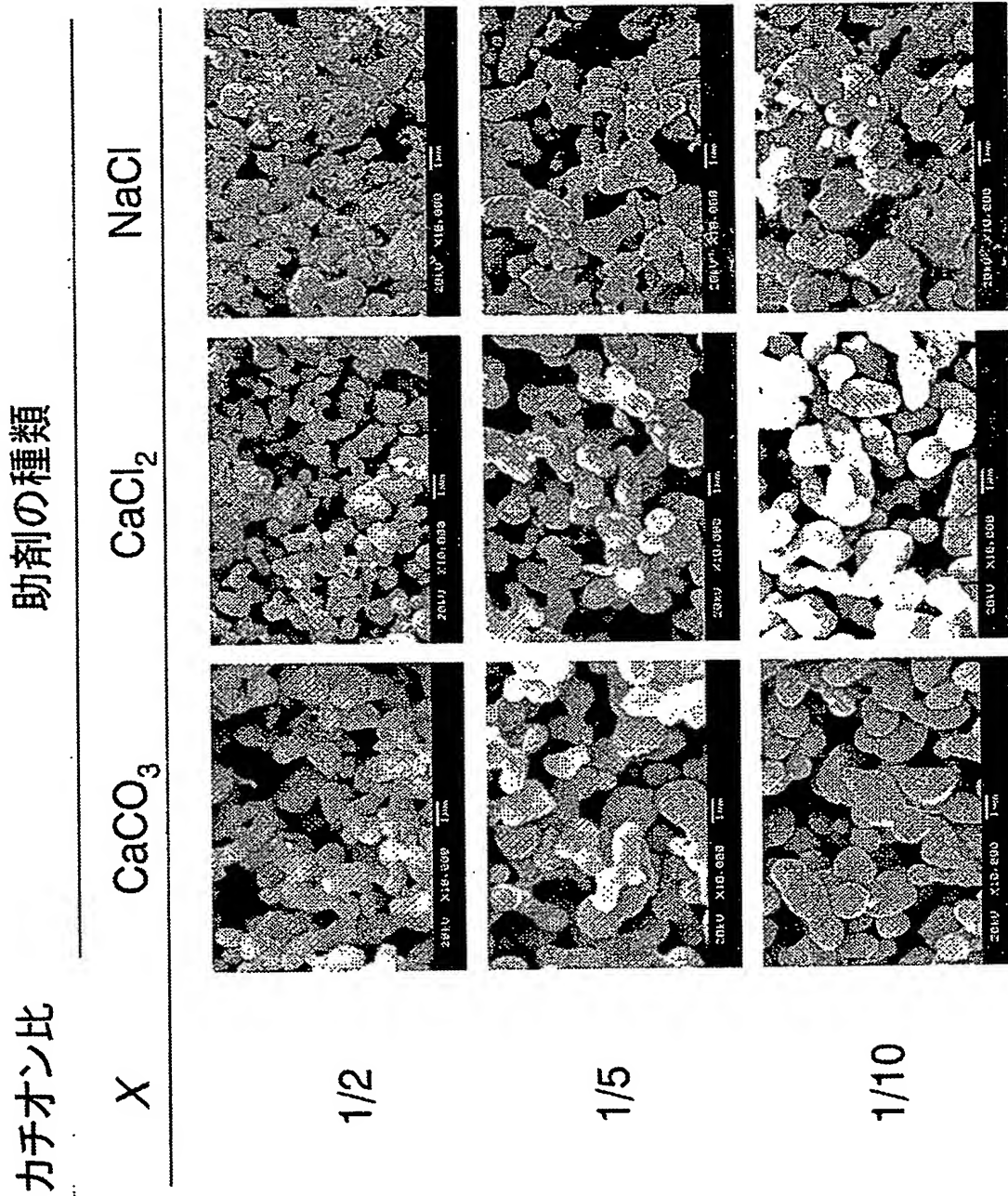
【書類名】

図面

【図 1】



【図 2】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 ニオブ化合物から直接高純度のニオブを効率よく製造することができ、好ましくはプロセスの連続化も容易なニオブ粉末の製造方法を提供する。

【解決手段】 本発明に係るニオブ粉末の製造方法は、ニオブ化合物を原料とし、該ニオブ化合物を還元してニオブを製造する方法であって、前記ニオブ化合物を粘結剤と混合し、所定形状に成形した後、焼成してニオブ原料成形体を作製する成形工程と、前記ニオブ原料成形体と活性金属とを接触させることにより前記ニオブ化合物を還元してニオブを生成する還元工程と、を含むことを特徴としている。

【選択図】 なし

## 認定・付加情報

特許出願の番号 特願 2002-173198  
受付番号 50200862452  
書類名 特許願  
担当官 田丸 三喜男 9079  
作成日 平成14年 6月19日

## &lt;認定情報・付加情報&gt;

## 【特許出願人】

【識別番号】 801000049  
【住所又は居所】 東京都目黒区駒場四丁目6番1号  
【氏名又は名称】 財団法人生産技術研究奨励会

## 【特許出願人】

【識別番号】 502213313  
【住所又は居所】 ブラジル サンパウロ州 セーイーペー 045  
52-902 サンパウロ リュア ペケチッタ  
, 111  
【氏名又は名称】 コンパニア ブラジレイラ デ メタルジア イ  
ミネラサウン

## 【代理人】

申請人  
【識別番号】 100064908  
【住所又は居所】 東京都新宿区高田馬場3丁目23番3号 ORビ  
ル 志賀国際特許事務所  
【氏名又は名称】 志賀 正武

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100108578  
【住所又は居所】 東京都新宿区高田馬場3丁目23番3号 ORビ  
ル 志賀国際特許事務所  
【氏名又は名称】 高橋 詔男

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100089037  
【住所又は居所】 東京都新宿区高田馬場3丁目23番3号 ORビ  
ル 志賀国際特許事務所  
【氏名又は名称】 渡邊 隆

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100101465

次頁有

## 認定・付加情報 (続き)

【住所又は居所】 東京都新宿区高田馬場3丁目23番3号 ORビ  
ル 志賀国際特許事務所

【氏名又は名称】 青山 正和

【選任した代理人】

【識別番号】 100094400

【住所又は居所】 東京都新宿区高田馬場3丁目23番3号 ORビ  
ル 志賀国際特許事務所

【氏名又は名称】 鈴木 三義

【選任した代理人】

【識別番号】 100107836

【住所又は居所】 東京都新宿区高田馬場3丁目23番3号 ORビ  
ル 志賀国際特許事務所

【氏名又は名称】 西 和哉

【選任した代理人】

【識別番号】 100108453

【住所又は居所】 東京都新宿区高田馬場3丁目23番3号 ORビ  
ル 志賀国際特許事務所

【氏名又は名称】 村山 靖彦

次頁無

特願 2002-173198

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[801000049]

1. 変更年月日

2001年 8月31日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都目黒区駒場四丁目6番1号

氏 名

財団法人生産技術研究奨励会



特願 2002-173198

出願人履歴情報

識別番号

[502213313]

1. 変更年月日

2002年 6月13日

[変更理由]

新規登録

住 所

ブラジル サンパウロ州 セーイーペー 04552-902

サンパウロ リュア ペケチッタ, 11.1

氏 名

コンパニア ブラジレイラ デ メタルジア イ ミネラサウ  
ン

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**